



**PENENTUAN RASIO MOL PELARUT Na^+/SiO_2 TERBAIK
PADA SINTESIS ZSM-5 DARI ZEOLIT ALAM LAMPUNG (ZAL) DENGAN
SUMBER SILIKA PENAMBAH *BAGASSE FLY ASH* (BFA) MENGGUNAKAN
TEMPLATE TETRA PROPYL AMMONIUM BROMIDE (TPABr)**

Mustaina¹, Harry Utomo P¹, Simparmin Br Ginting¹ dan Hens Saputra²

¹Chemical Engineering Lampung University
.id

²Center of Technology Process Industry - TIRBR
Agency for Assessment and Application of Technology- BPPT
Jl. Prof. Dr. Soemantri Brojonegoro Street No.1 Bandar Lampung 35145
Surel :mustaina.0939@gmail.com

ABSTRACT

This research aimed to synthesize ZSM-5 with BFA as a source of silica to get the best ratio of solvent as ratio Na^+/SiO_2 (mol/mol) in order to get ZSM-5 with a high percentage of crystallinity. Zeolite synthesis was conducted in alkaline hydro-thermal autoclave by varying the ratio of Na^+/SiO_2 (mol/mol) 0.2; 0.3 and 0.4 for 36 hours. BFA was firstly pretreated by using H_2SO_4 in order to remove impurities and produce a higher silica BFA, then synthesized and characterized by using XRD to get diffractogram pattern. From the result, there was no ZSM-5 formed in the product, but analcim & heulandite as intermediate products, and residual reactants such as clinoptilolite and quartz. Percentages of crystallinity product produced at Na^+/SiO_2 variation as based amorf, on run 1 until 3 were 17.24%; 20.49% and 21.80%. The best result occurred at Na^+/SiO_2 ratio of 0.4 mol/mol with a percentage of crystallinity 21,80%.

Keywords : analcim, bagasse fly ash, percentage of crystallinity, ZSM-5

PENDAHULUAN

Zeolit merupakan kristal alumina silika berongga yang mengandung molekul alkali/alkali tanah dan molekul air. Zeolit terdiri dari zeolit sintesis dan zeolit alam. Zeolit dapat dimanfaatkan dalam industri sebagai penukar ion, adsorben, maupun katalis. Pemanfaatan zeolit sebagai katalis kini semakin diminati oleh industri *petroleum* pada proses perengkahan hidrokarbon. Salah satu jenis zeolit yang sering digunakan dalam proses perengkahan hidrokarbon adalah ZSM-5 (*Zeolite Socony Mobile-5*).

Lampung memiliki sumber zeolit alam yang melimpah. Pada tahun 2012 data Direktorat Pengembangan Potensi Daerah (BKPM) menyatakan bahwa Lampung memiliki sumber zeolit alam 31.173.505 Ton. Sumber zeolit yang melimpah menginspirasi peneliti untuk memanfaatkan zeolit alam Lampung (ZAL) sebagai



bahan baku pembuatan ZSM-5. Namun, ZAL memiliki kandungan silika rendah sehingga perlu ditambahkan sumber silika penambah agar dapat dikonversi menjadi ZSM-5. Salah satu sumber silika yang menjanjikan untuk dikembangkan dalam proses sintesis ZSM-5 yaitu limbah pabrik gula. Limbah pabrik gula yaitu ampas tebu (*bagasse*). Ampas tebu mudah terbakar, sehingga bila tertumpuk akan terfermentasi dan melepaskan panas sehingga beresiko menimbulkan kebakaran pabrik (Hamawi, 2005). Oleh karena itu, saat ini pabrik gula memanfaatkan ampas tersebut sebagai bahan bakar *boiler*. Hasil sampingan dari pembakaran ampas tebu disebut dengan *bagasse fly ash* (BFA). BFA tersebut apabila tidak ditangani dengan tepat akan menjadi limbah yang dapat mencemari tanah, air dan udara. BFA memiliki kandungan SiO_2 yang cukup tinggi yaitu sebesar 49,98 % massa, Purnomo (2007). Sehingga sangat berpotensi menjadi penambah silika pada sintesis ZSM-5.

Andhika dan Ginting (2013) juga telah melakukan sintesis ZSM-5 menggunakan BFA diperoleh produk ZSM-5 dengan 25% kristalinitas. Pada tahun yang sama Utomo dan Ginting (2013) melakukan sintesis ZSM-5 menggunakan BFA yang ditambah dengan alumina sintesis menghasilkan produk ZSM-5 dengan persen kristalinitas 29,42 %. Pada hasil penelitian diatas masih belum memperoleh ZSM-5 dengan persen kristalinitas yang tinggi, oleh karena itu peneliti akan melakukan penelitian lebih lanjut dengan mensintesis ZSM-5 menggunakan ZAL dan BFA sebagai sumber silika penambah.

METODE

Penelitian ini dilakukan di Laboratorium penelitian Teknik Kimia Universitas Lampung dan di Laboratorium Teknologi Industri Proses Badan Pengkajian dan Penerapan Teknologi (BPPT) – Serpong Tangerang. Waktu penelitian dilaksanakan pada bulan Mei 2013. Bahan yang digunakan pada penelitian ini adalah Zeolit Alam Lampung (ZAL) yang berasal dari CV MINATAMA Bandar Lampung, *Bagasse Fly Ash* (BFA) yang berasal dari PT Gunung Madu Plantations (GMP) Lampung Tengah, H_2SO_4 96 %, aquades, NaOH, *Tetra Propil Ammonium Bromide* (TPABr). Alat yang digunakan pada penelitian ini adalah ayakan 100 mesh, sendok, neraca digital, gelas ukur, gelas imia, pipit tetes, *magnetic stirrer*, pH meter, corong, kertas saring, spatula, cawan porselin, *autoclave*, oven, *furnace* dan desikator.

Pretreatment ZAL dengan melakukan pemanasan pada oven dengan temperatur 105°C selama 2 jam. Hal ini bertujuan untuk mengurangi kadar air pada ZAL. Selanjutnya *pretreatment* BFA yang mengacu pada proses yang dilakukan oleh Kurniati (2009). Adapun yang dilakukan adalah menumbuk BFA sampai halus, lalu diayak dengan ayakan berukuran 100 mesh. Kemudian 45 gram BFA direndam dalam larutan H_2SO_4 15 mL pada gelas kimia dan ditambahkan aquades sebanyak 450 mL serta diaduk selama 30 menit. Selanjutnya disaring dengan kertas saring untuk memisahkan filtrat dan endapan BFA. Endapan BFA yang terbentuk dicuci dengan aquades sebanyak tiga kali dan dikeringkan pada oven 150°C selama 1 jam. BFA kering dibakar dalam *furnace* pada 600°C selama 4 jam dan didinginkan. Kemudian dilakukan analisis gravimetri di Balai Penguji dan Kalibrasi Balai Riset dan Standarisasi Industri Bandar Lampung.

Sintesis ZSM-5 mengacu pada prosedur yang telah dilakukan Utomo dan Ginting (2013) Jacobs dan Martens (1987) dan Chareonpanich (2004). Dengan membuat larutan A, B, dan C terlebih dahulu dari bahan yang sudah disiapkan. Larutan A dibuat dengan melarutkan ZAL dengan NaOH, larutan B melarutkan BFA (hasil *pretreatment*) dengan NaOH, dan larutan C melarutkan TPABr ke dalam aquades. Lalu diaduk selama 1,5 jam dengan terus menambahkan larutan B dan larutan C sedikit demi sedikit. Setelah itu di dapat campuran yang memiliki pH berkisar 11-13. Untuk memperoleh pH 11 ditambahkan H_2SO_4 1 N setetes demi setetes hingga dicapai pH 11. Campuran yang dihasilkan dimasukkan ke dalam *autoclave* dan dipanaskan pada temperatur tetap 180°C dengan tekanan *autogenous* selama 36 jam tanpa pengadukan. Padatan yang terbentuk disaring dan dicuci dengan aquades 3 kali, kemudian dikeringkan dalam oven pada temperatur 105°C selama 2 jam dan dikalsinasi pada suhu 550°C selama 2 jam. Selanjutnya produk sintesis siap dikarakteristik menggunakan difraksi sinar X (XRD).

HASIL DAN PEMBAHASAN

Dalam penelitian ini telah dilakukan sintesis ZSM-5 dengan menggunakan bahan baku berupa zeolit alam dengan silika penambah dari BFA. Penelitian ini awalnya menggunakan silika penambah dari *fly ash* cangkang sawit (FACS). Namun,

setelah dilakukan *pretreatment* kadar SiO_2 dan Al_2O_3 pada FACS dan ZAL menjadi sangat rendah. Dimana hasil analisis SEM-EDS dapat dilihat pada Tabel 1.

Tabel 1. Hasil analisis SEM-EDS.

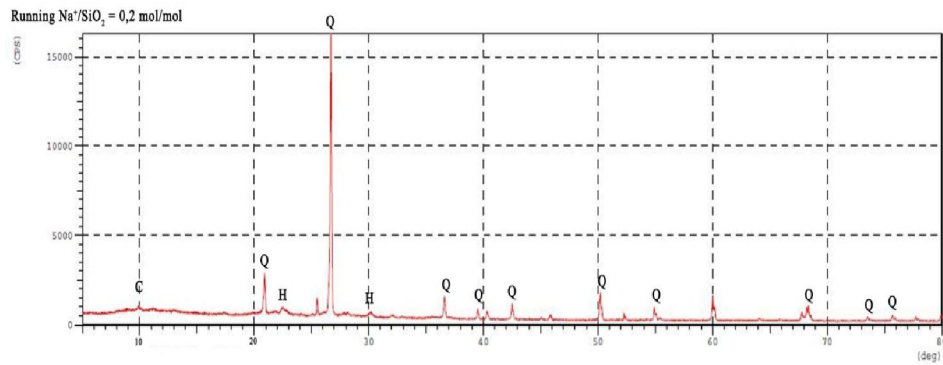
Parameter	FACS	ZAL
Si	16%	21,45%
Al	2,2%	4,51%

Dari Tabel 1 Dapat dilihat bahwa kandungan Si dan Al pada FACS dan ZAL setelah *pretreatment* terlalu rendah dibandingkan dengan FACS dan ZAL sebelum *pretreatment*. Sehingga penelitian dilanjutkan menggunakan sumber silika penambah yang berasal dari BFA dengan dilakukan *pretreatment* terlebih dahulu menggunakan metode penelitian Kurniati (2009). Dengan hasil analisis dapat dilihat pada Tabel 2.

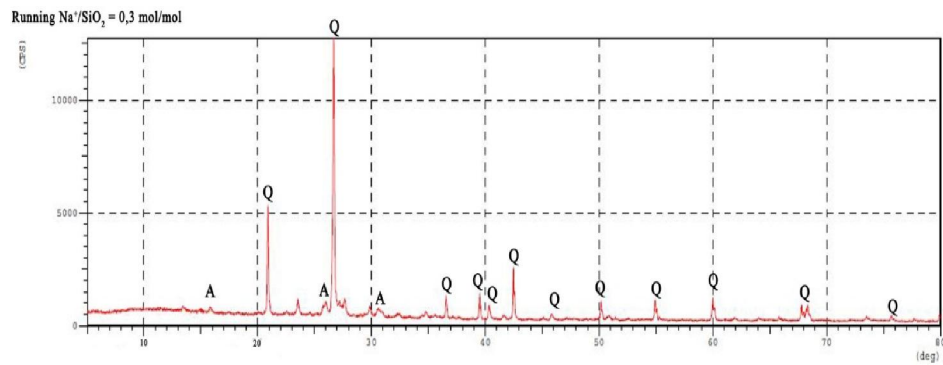
Tabel 2. Hasil analisis menggunakan metode gravimetri (Kadar SiO_2 dan Al_2O_3 pada BFA dan ZAL setelah *Pretreatment*).

Parameter	BFA	ZAL
SiO_2	92,51%	84,58%
$\text{Al}_2\text{O}_3+\text{Fe}_2\text{O}_3$	1,19%	2,19%

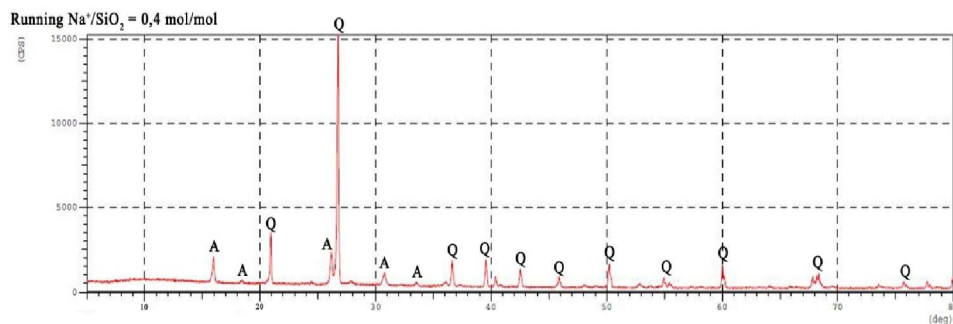
Selanjutnya dilakukan sintesis dengan mengacu pada metode yang dilakukan oleh Utomo dan Ginting (2013) dengan memvariasikan rasio pelarut Na^+/SiO_2 . Selanjutnya didapat padatan dan kemudian dikarakterisasi untuk mengetahui struktur yang terbentuk dari produk yang dihasilkan dengan dilakukan analisis *X-Ray Diffraction* (XRD). Berdasarkan hasil XRD, pola yang dihasilkan dapat dilihat pada Gambar berikut.



Gambar 1. Pola XRD run 1 variasi rasio Na^+/SiO_2 0,2 mol/mol.



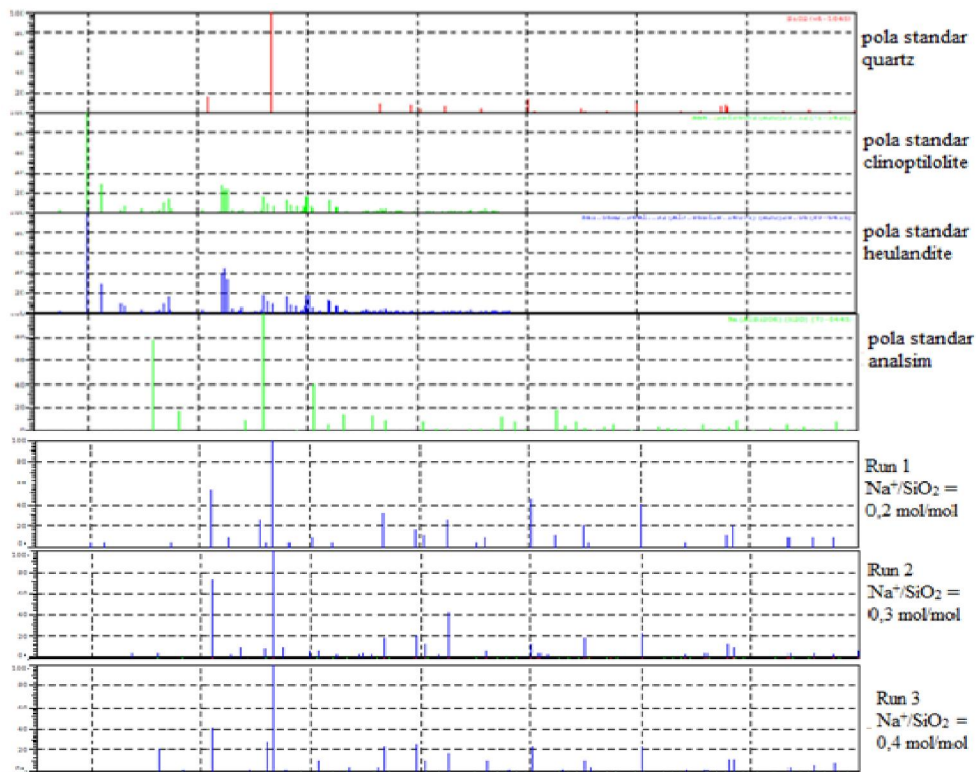
Gambar 2. Pola XRD run 2 variasi rasio Na^+/SiO_2 0,3 mol/mol.



Gambar 3. Pola XRD run 3 variasi rasio Na^+/SiO_2 0,4 mol/mol.

Keterangan : C: *Clinoptilolite* H: *Heulandite* A : *Analcim* Q : *Quartz*

Pola yang dihasilkan tidak membentuk ZSM-5 melainkan produk yang terbentuk adalah *heulandite* dan *analcim* serta didominasi oleh *quartz* dan sedikit *clinoptilolite* sebagai sisa reaktan. Hal ini dapat dilihat dari pola XRD yang dihasilkan sama dengan pola difraksi dari masing-masing standar yang dapat dilihat pada Gambar 4.

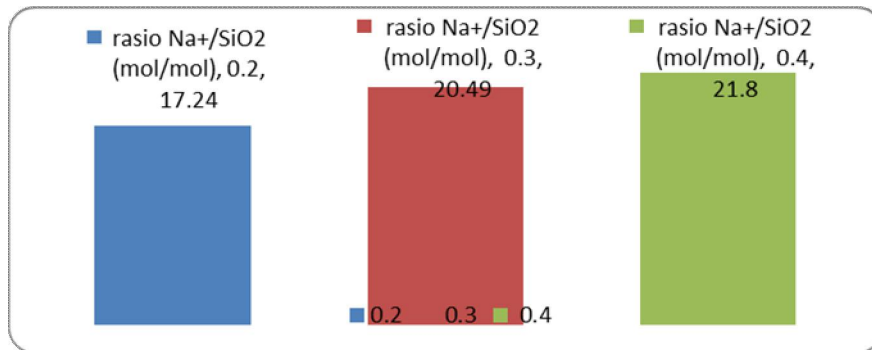


Gambar 4. Pola difraksi run 1-3 dibandingkan dengan pola standar.

Selanjutnya dilakukan analisis kuantitatif untuk mengetahui persen kristalinitas produk yang terbentuk pada setiap run. Metode yang digunakan yaitu metode *based amorf* yaitu dengan membandingkan luas kristalin terhadap luas seluruh area (*amorf* + kristalin) dari pola difraksi XRD. Persen kristalinitas produk dapat dilihat pada Tabel 3 dan Gambar 5.

Tabel 3. Persen kristalinitas produk dengan metode *based amorf*.

Run	Rasio Na ⁺ /Si ₂ O ₂	Kristalinitas Produk(%)
1	0,2	17,24
2	0,3	20,49
3	0,4	21,80



Gambar 5. Grafik hubungan rasio Na⁺/SiO₂ terhadap persen kristalinitas produk.

Dari grafik di atas dapat diketahui persen kristalinitas yang didapat dari ketiga run relatif rendah. Hal ini disebabkan silika yang terdapat dalam bahan baku sulit melarut, sehingga sulit untuk membentuk ZSM-5 dan cenderung membentuk struktur lain. Semakin tinggi rasio Na⁺/SiO₂ maka semakin tinggi persen kristalinitas produk yang terbentuk. Semakin tinggi konsentrasi NaOH yang digunakan sebagai pelarut maka semakin rendah intensitas silika alumina yang tidak bereaksi. Hal ini menunjukkan bahwa dengan bertambahnya konsentrasi NaOH, maka reaktan yang tidak bereaksi dalam produk semakin kecil sehingga dapat meningkatkan persen kristalinitas produk yang didapat. Konsentrasi basa mineral berpengaruh terhadap karakteristik produk yang dihasilkan. Semakin tinggi Penggunaan larutan NaOH pada proses hidrotermal menyebabkan terjadinya konversi fraksi amorph dan sebagian mineral aluminasilikat menjadi mineral zeolit. Dalam hal ini NaOH sebagai *reagen* pengarah untuk membentuk zeolit *analcim* (Na (Si₂Al) O₆.H₂O), dimana zeolit jenis ini berada pada fase metastabil dan masih banyak kandungan H₂O. Jika waktu sintesis diperpanjang maka fasa *analcim* akan berubah menjadi zeolit lain yang tergantung pada metode serta bahan baku sintesisnya (Weitkamp dan Puppe, 1999).

Dari hasil karakterisasi XRD yang telah dilakukan, diperoleh *Space Grup* (S.G) dalam bentuk kristal yang didominasi oleh *quartz* dengan jenis kristal *trigonal* dan *analcim* dengan jenis kristal kubik (Pecharsky dan Zavalij, 2009). Struktur *analcim* mengandung saluran terbuka yang besar yang memudahkan air dan ion-ion besar untuk bergerak keluar masuk sehingga mudah untuk diaplikasikan secara luas dalam teknologi.

KESIMPULAN

Berdasarkan hasil penelitian dapat disimpulkan bahwa :

1. Dari hasil analisis kualitatif, proses alkali hidrotermal menghasilkan *heulandite* untuk run 1 dan zeolit *analcim* untuk run 2 dan 3 yang merupakan produk dominan, serta sisa reaktan yang belum meluruh seluruhnya berupa *quartz* dan *clinoptilolite*.
2. Sintesis ZSM-5 membutuhkan kelarutan silika yang tinggi sedangkan silika yang terkandung pada BFA sangat sulit larut, sehingga BFA kurang cocok untuk dijadikan bahan baku dalam sintesis ZSM-5.
3. Persen kristalinitas produk berdasarkan *base amorf* untuk rasio Na^+/SiO_2 0,2; 0,3 dan 0,4 berturut-turut adalah 17,24%; 20,49% dan 21,8%.
4. Rasio Na^+/SiO_2 terbaik pada penelitian ini yaitu 0,4 mol/mol dengan persen kristalinitas tertinggi 21,8%.

Saran

Adapun saran yang berikan yaitu perlu dilakukan pengkajian lebih lanjut pada rasio Na^+/SiO_2 , dan waktu hidrotermal yang tepat untuk memperoleh persen kristalinitas *analcim* yang lebih tinggi serta dapat membentuk ZSM-5 seperti yang diharapkan. Dan dilihat dari rendahnya kelarutan silika pada proses sintesis ini, maka disarankan agar BFA digunakan sebagai sumber silika penambah pada sintesis zeolit yang memiliki kadar silika rendah, seperti zeolit X, Zeolit NaA, *analcim*, dll.

DAFTAR PUSTAKA

- Andika dan Ginting, S.Br. 2013. *Sintesis Zeolit ZSM-5 dari Fly Ash Baggase dengan Penambah Alumina*. Bandar Lampung: Laporan Penelitian Universitas Lampung.
- Chareonpanich, Metta, Namto, T., Kongkachuichay, P. dan Limtrakul, J. 2004. *Synthesis of ZSM-5 Zeolite from Lignite Fly Ash and Rice Husk Ash*. Fuel Processing Technology 85 (2004) 1623 – 1634.
- CV. Minatama. 2010. *Composition and Properties of ZKK*. Bandar Lampung : CV Minatama Produsen Zeolite ZKK.
- Direktorat Pengembangan Potensi Daerah BKPM. 2012. *Potensi Zeolit dari Lampung*. <http://regionalinvestment.bkpm.go.id/newsipid/id/commodityara.php?ic=744&ia=18>.



- Hamawi, M. 2005. *Blotong : Limbah Busuk Berenergi*. Pradya Paramita, Jakarta.
- Jacob, PA. dan Martens, JA. 1987. *Synthesis of High Silica Aluminosilicate Zeolite*. Netherlands :Elsevier Science Publishing Company Inc.
- Kurniati, E. 2009. *Ekstraksi Silica White Powder dari Limbah Padat Pembangkit Listrik Tenaga Panas Bumi Dieng*. UPN Press. Surabaya.
- Pecharsky dan Zavalij. 2009. *Fundamentals of Powder Diffraction and Structural Characterization of Material*. Spinger : USA.
- Purnomo, Chandra, W., dan Prasetya, Agus. 2007. *The Study of Adsorption Breakthrough Curves of Cr (VI) on Bagasse Fly Ash (BFA)*. San Fransisco, USA.
- Utomo, H. dan Ginting, S. Br. 2013. *Sintesis Zeolit ZSM-5 dari Fly Ash Baggase dengan Penambah Alumina*. Bandar Lampung: Laporan Penelitian Universitas Lampung.
- Weitkamp,J. dan Pupe,L. 1999. *Catalysis and Zeolites Fundamental and Application*, Berlin. Germany.